

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年3月1日 (01.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/13729 A1

(51) 国際特許分類⁷: A01N 43/56, 57/18, 25/30

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/05632

(22) 国際出願日: 2000年8月23日 (23.08.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願平11/235423 1999年8月23日 (23.08.1999) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本農薬株式会社 (NIHON NOHYAKU CO., LTD.) [JP/JP]; 〒103-8236 東京都中央区日本橋1丁目2番5号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 金山正博 (KANAYAMA, Masahiro) [JP/JP]; 〒617-0827 京都府長岡京市竹の台1-B1-201 Kyoto (JP). 馬渕 勉

(52) (MABUCHI, Tsutomu) [JP/JP]; 〒589-0011 大阪府大阪狭山市半田3丁目361-1-611 Osaka (JP). 大塚 隆 (OHTSUKA, Takashi) [JP/JP]; 〒584-0062 大阪府富田林市大字須賀74-1-602 Osaka (JP). 古瀬純隆 (KOSE, Sumitaka) [JP/JP]; 〒533-0032 大阪府大阪市東淀川区淡路1-20-8 Osaka (JP).

(74) 代理人: 浅村 皓, 外 (ASAMURA, Kiyoshi et al.); 〒100-0004 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 新大手町ビル331 Tokyo (JP).

(81) 指定国(国内): US.

(84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイドスノート」を参照。

(54) Title: HERBICIDAL COMPOSITIONS AND METHOD OF USING THE SAME

(54) 発明の名称: 除草剤組成物及びその使用方法

(57) Abstract: Herbicidal compositions containing as the active ingredients one or more compounds selected from among light-requiring herbicidal compounds and one or more compounds selected from among organophosphorus herbicidal compounds, characterized by containing ethylenediamine alkoxylates and alcohol alkoxylates as surfactants. These herbicidal compositions have an excellent immediate action and exert a remarkable herbicidal effect even in a small dose.

(57) 要約:

本発明は、光要求型除草性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物及び有機リン系除草性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物を有効成分として含有する除草剤組成物において、界面活性剤としてエチレンジアミンアルコキシレート類及びアルコールアルコキシレート類を含有することを特徴とする除草剤組成物及びその使用方法を提供する。本発明の除草剤組成物は、優れた速効性を有し、且つ少量で顕著な除草効果を示す。

WO 01/13729 A1

明細書

除草剤組成物及びその使用方法

5 技術分野

本発明は速効性、効果の向上及び長期製剤安定性を有する除草剤組成物に関するものである。

背景技術

一般式(I)で表される光要求型除草性化合物のうち、一般式(I-1)で表される
10 3-置換フェニルピラゾール誘導体は特開平3-163063号公報及び同4-
211065号公報等に記載の公知化合物で、茎葉処理除草剤として畑作における有害雑草である広葉雑草全般に対して卓越した除草活性を有する化合物として記載されている。

全体的な化学構造や置換基の相対的配置が一般式(I-1)の化学構造に類似した
15 多数の化合物が光要求型又はプロトックス阻害型除草剤として同様の除草活性を示すことが知られている (Anderson et al., ACS Symposium Series, Vol. 559, Porphyrin Pesticides, S.O. Duke and C.A. Robeiz eds. p. 18-34 (1994))。又、これらの光要求型除草剤に対して共通に、特定の遺伝子を植物に導入することにより、除草剤に対する抵抗性を付与できることが知られている (国際特許出
20 願公開WO 98/29554号公報)。

一方、有機リン系除草性化合物、例えばN-(ホスホノメチル)グリシン又はその塩は特開昭47-39538号公報及び同57-95994号公報に、4-[ヒドロキシ(メチル)ホスフィノ]-DL-ホモアラニン又はその塩は特開昭57-26564号公報に、4-[ヒドロキシ(メチル)ホスフィノ]-L-ホモアラニル-L-アラニル-L-アラニン又はその塩は特開昭50-23282号公報等に記載の非選択性茎葉処理用除草剤として公知の化合物である。

又、特願平7-242510号公報に3-置換フェニルピラゾール誘導体と有機リン系除草性化合物を含有する除草剤組成物が記載されている。

又、Weed Sci. Soc. 25, (1977), p. 275-287に

アルコールアルコキシレート類のN-(ホスホノメチル)グリシンに対するアジュバント効果についての報告がされている。しかしながら、充分なアジュバント効果が得られず、N-(ホスホノメチル)グリシン水溶液と相溶しにくいという問題があった。

5 光要求型除草活性化合物、特に一般式(I-1)で表される3-置換フェニルピラゾール誘導体と有機リン系除草性化合物を含有する除草剤組成物において、更なる除草効果の向上と、速効性の改善が望まれていた。

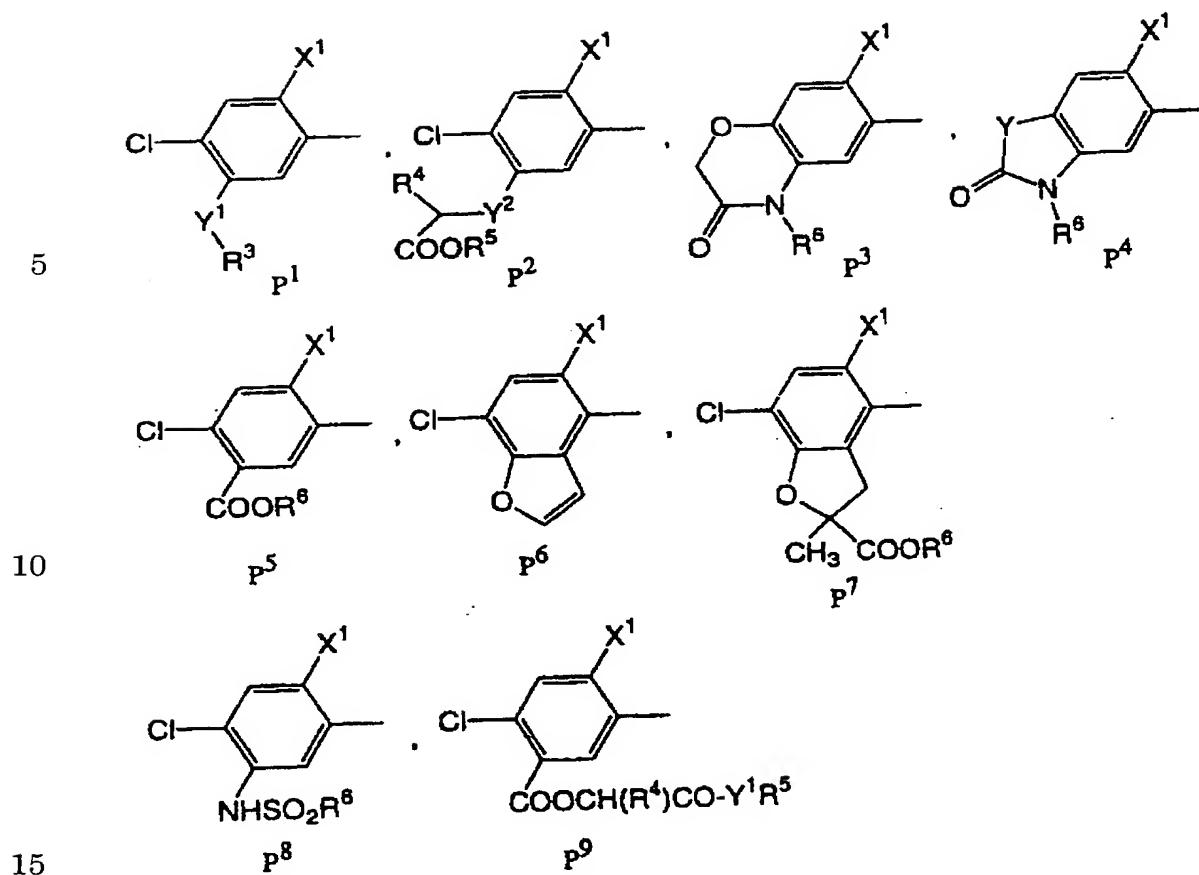
本発明者等は前記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、光要求型除草活性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物、特に一般式(I-1)で表される
10 3-置換フェニルピラゾール誘導体から選択される1種又は2種以上の化合物と有機リン系除草性化合物を有効成分として含有する除草剤組成物において、界面活性剤としてエチレンジアミンアルコキシレート類とアルコールアルコキシレート類を添加することにより、その相乗効果により極めて優れた速効性及び効果の向上が得られ、且つ長期に安定な除草剤組成物が得られることを見いだし、本発
15 明を完成させたものである。

発明の開示

本発明は、光要求型除草性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物及び有機リン系除草性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物を有効成分として含有する除草剤組成物において、界面活性剤としてエチレンジアミンアル
20 コキシレート類及びアルコールアルコキシレート類を含有する除草剤組成物に関するものであり、詳しくは一般式(I)

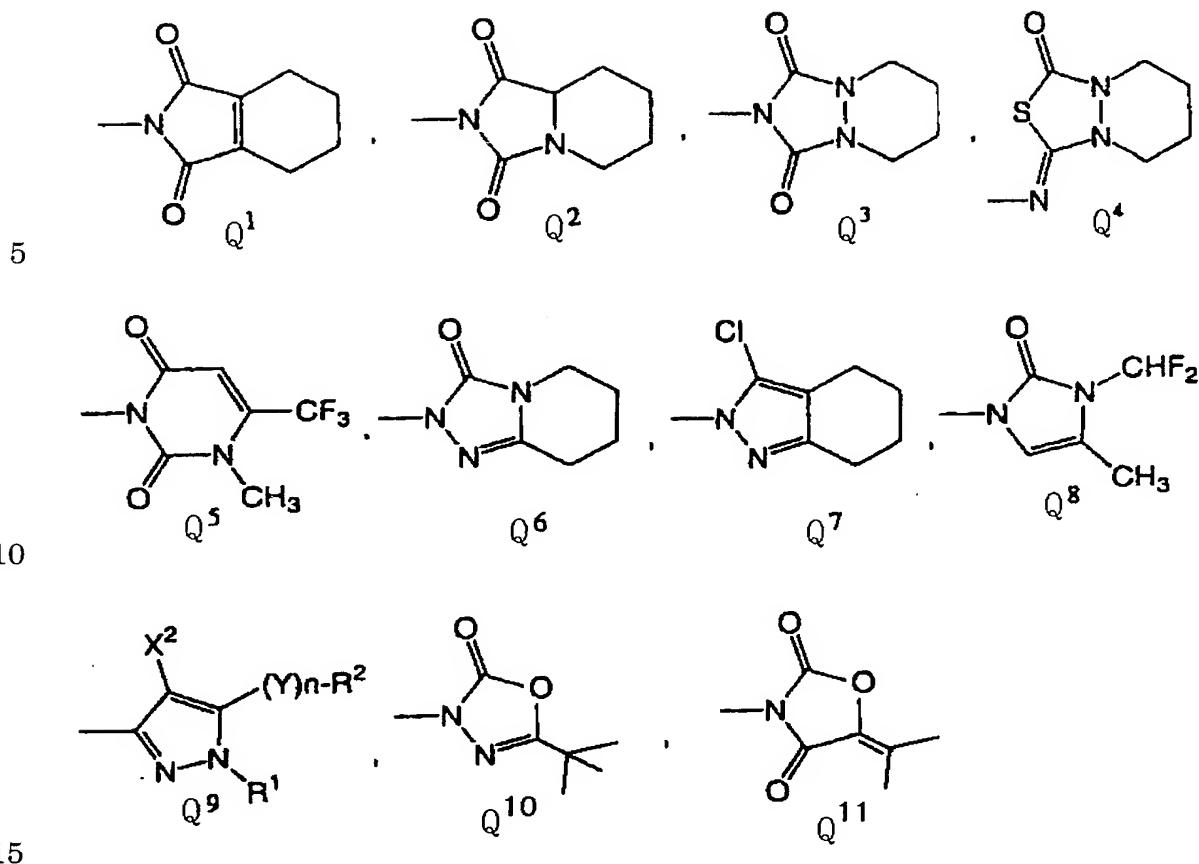


[式中、Pは $P^1 \sim P^9$



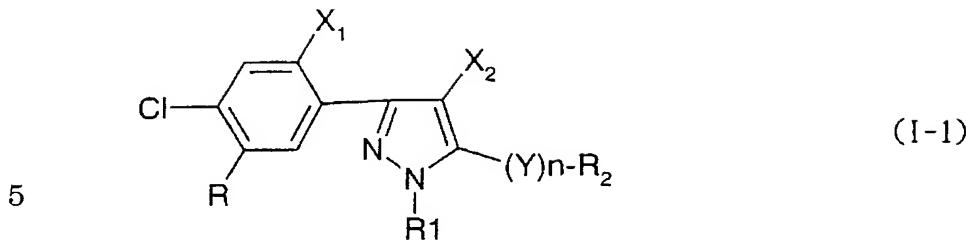
(式中、X¹、Y¹、Y²、R³、R⁴、R⁵及びR⁶は後記に示す。)

から選択される基を示し、QはQ¹～Q¹¹



(式中、R¹は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R²は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基又はハロ(C₁-C₆)アルキル基を示し、R³は(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₃-C₆)シクロアルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、R⁴は水素原子又は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R⁵は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、R⁶は(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、X¹及びX²は同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、Yは-O-、-S-、-SO-又は-SO₂-を示し、Y¹は-O-又は-S-を示し、Y²は-O-、-S-又は-NH-を示し、nは0又は1の整数を示す。)]で表される化合物から選択される1種又は2種以上の化合物、更に詳しくは、

一般式(I-1)



[式中、Rは-Y¹-R³（式中、R³は(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、Y₁は-O-又は-S-を示す。）、-Y²CH(R⁴)CO-OR⁵（式中、R⁴は水素原子又は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R⁵は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、Y²は-O-、-S-又は-NH-を示す。）、-COOCH(R⁴)CO-Y¹R⁵（式中、R⁴、R⁵及びY¹は前記に同じ。）又は-COOR⁶（式中、R⁶は(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示す。）を示し、R¹は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R²は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基又はハロ(C₁-C₆)アルキル基を示し、X¹及びX²は同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、Yは-O-、-S-、-SO-又は-SO₂-を示し、nは0～1の整数を示す。]

20 で表される3-置換フェニルピラゾール誘導体から選択される1種又は2種以上の化合物及び有機リン系除草性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物を有効成分として含有する除草剤組成物において、界面活性剤としてエチレンジアミンアルコキシレート類及びアルコールアルコキシレート類を含有する除草剤組成物に関するものである。

25 発明を実施するための形態

本発明の一般式(I) 又は一般式(I-1) の各置換基中、(C₁-C₆) アルキル基は、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基等の炭素原子数1～6の直鎖状又は分岐状のアルキル基を示し、ハロ(C₁-C₆)

アルキル基は塩素原子、フッ素原子、ヨウ素原子及び臭素原子から選択される同一又は異なっても良い1個以上のハロゲン原子で置換された炭素原子数1～6の直鎖状又は分岐状のアルキル基を示し、(C₂～C₆) アルケニル基は炭素原子数2～6の直鎖状又は分岐状のアルケニル基を示し、(C₂～C₆) アルキニル基は炭素

5 原子数2～6の直鎖状又は分岐状のアルキニル基を示す。

本発明の光要求型除草性化合物としては、例えば

(1) . 3-(4-クロロ-5-(シクロヘキサメチルオキシ)-2-フルオロフェニル)-5-イソプロピリデン-1, 3-オキサゾリジンジオン (一般名: ペントキサゾン)

10 (2) . ペンチル [2-クロロ-5-(シクロヘキサメチルオキシ)-2-ジカルボキシイミド]-4-フルオロフェノキシ] アセテート (一般名: フルミクロラックペンチル)

(3) . 7-フルオロ-6-[(3, 4, 5, 6-テトラヒドロ) フタルイミド]-4-(2-プロピニル)-1, 4-ベンゾオキサジン-3 (2H)-オン
15 (一般名: フルミオキサジン)

(4) . エチル (RS)-2-クロロ-3-[2-クロロ-5-(4-フルオロメチル)-4, 5-ジヒドロ-3-メチル-5-オキソ-1H-1, 2, 4-トリアゾール-1-イル)-4-フルオロフェニル] プロピオネート (一般名: カルフェントラゾンエチル)

20 (5) . 2', 4'-ジクロロ-5'-(4-ジフルオロメチル)-4, 5-ジヒドロ-3-メチル-5-オキソ-1H-1, 2, 4-トリアゾール-1-イル) メタンスルホニアリド (一般名: サルフェントラゾン)

(6) . 2-(2, 4-ジクロロ-5-プロピン-2-イルオキシフェニル)-5, 6, 7, 8-テトラヒドロ-1, 2, 4-トリアゾロ[4, 3-a]ピリジン-3 (2H)-オン (一般名: アザフェニジン)
25

(7) . 5-tert-ブチル-3-[2, 4-ジクロロ-5-(プロピン-2-イルオキシ) フェニル]-1, 3, 4-オキサジアゾール (一般名: オキサジアルギル)

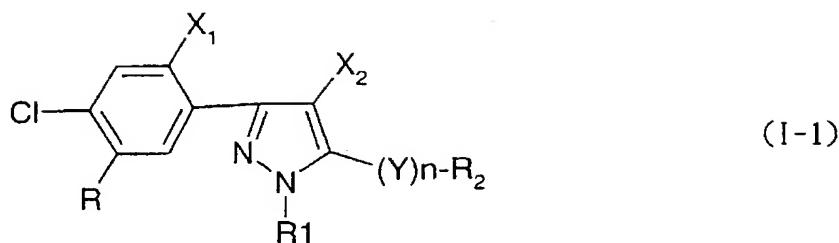
(8) . 5-tert-ブチル-3-(2, 4-ジクロロ-5-イソプロポキシ

フェニル) - 1, 3, 4-オキサジアゾール-2 (3 H) - オン (一般名 : オキサジアゾン)

(9). メチル [2-クロロ-4-フルオロ-5-(5, 6, 7, 8-テトラヒドロ-3-オキソ-1 H, 3 H-[1, 3, 4]チアジアゾロ[3, 4-a]5ピリダジン-1-イリデンアミノ)フェニルチオ]アセテート (一般名 : フルチアセットメチル)

等の化合物が挙げられ、又同様の作用を示す化合物群としては、例えばニトロフェン (一般名)、ビフェノックス (一般名)、オキシフルオルフェン (一般名)、アシフルオルフェン (一般名)、フォメサーフェン (一般名) 等のジフェニルエーテル系化合物が知られている。また、この他に一般式(I-1)で表される3-置換フェニルピラゾール誘導体を例示することができる。

一般式(I-1)



5

表1 ($R_1 = CH_3$)

No	R	R_2	X_1	X_2	(Y)n	物性
1	$OCH_2CH=CH_2$	CH_3	C1	C1	S	$nD\ 1.6131 (25.3^\circ C)$
2	$OCH_2CH=CH_2$	CHF_2	C1	C1	0	$nD\ 1.5536 (28.4^\circ C)$
3	$OCH_2CH=CH_2$	CHF_2	F	C1	0	m.p. $63.7-64.1^\circ C$
4	$SCH_2CH=CH_2$	CH_3	C1	C1	S	ベースト
5	$SCH_2CH=CH_2$	CHF_2	C1	C1	0	m.p. $52.0-55.0^\circ C$
6	$SCH_2CH=CH_2$	CHF_2	F	C1	0	$nD\ 1.5670 (17.9^\circ C)$
7	$OCH_2C\equiv CH$	CH_3	C1	C1	S	m.p. $71.5^\circ C$
8	$OCH_2C\equiv CH$	CHF_2	C1	C1	0	m.p. $84.0^\circ C$
9	$OCH_2C\equiv CH$	CHF_2	F	C1	0	m.p. $98.0-98.1^\circ C$
10	$SCH_2C\equiv CH$	CH_3	C1	C1	S	m.p. $94.5^\circ C$
11	$SCH_2C\equiv CH$	CHF_2	C1	C1	0	m.p. $127-129^\circ C$
12	$SCH_2C\equiv CH$	CHF_2	F	C1	0	m.p. $82.8^\circ C$
13	OCH_2COOCH_3	CH_3	C1	C1	S	m.p. $126.2^\circ C$
14	OCH_2COOCH_3	CHF_2	C1	C1	0	m.p. $119.8^\circ C$
15	OCH_2COOCH_3	CHF_2	C1	Br	0	m.p. $133.8^\circ C$
16	OCH_2COOCH_3	CHF_2	F	C1	0	m.p. $122.8-123.1^\circ C$
17	$OCH_2COOC_2H_5$	CH_3	C1	C1	S	m.p. $106.5^\circ C$
18	$OCH_2COOC_2H_5$	CHF_2	C1	C1	0	m.p. $102.3^\circ C$
19	$OCH_2COOC_2H_5$	CHF_2	F	C1	0	m.p. $127.6^\circ C$

表1 (続き)

No	R	R ₂	X ₁	X ₂	(Y)n	物性
20	OCH ₂ COOC ₃ H ₇ -n	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 89.7 °C
21	OCH ₂ COOC ₃ H ₇ -n	CHF ₂	F	C1	0	m. p. 97.6-97.8°C
22	OCH ₂ COOC ₃ H ₇ -i	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 106.0 °C
23	OCH ₂ COOC ₃ H ₇ -i	CHF ₂	F	C1	0	m. p. 120.3-120.5 °C
24	OCH ₂ COOCH ₂ CH=CH ₂	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 84.7 °C
25	OCH ₂ COOCH ₂ CH=CH ₂	CHF ₂	F	C1	0	m. p. 89.2-89.4°C
26	OCH ₂ COOCH ₂ C≡CH	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 119.6 °C
27	OCH ₂ COOCH ₂ C≡CH	CHF ₂	F	C1	0	m. p. 99.0 °C
28	OCH(CH ₃)COOH	CH ₃	C1	C1	S	m. p. 191-194 °C
29	OCH(CH ₃)COOCH ₃	CH ₃	C1	C1	S	m. p. 90-93°C
30	OCH(CH ₃)COOCH ₃	CHF ₂	F	C1	0	m. p. 95.6 °C
31	OCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CH ₃	C1	C1	S	nD 1.5763(28.8°C)
32	OCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5238(25.7°C)
33	OCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	Br	0	nD 1.5396(20.8°C)
34	OCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	m. p. 67.0-67.2°C
35	OCH(CH ₃)COOC ₃ H ₇ -i	CH ₃	C1	C1	S	m. p. 87-90°C
36	SCH(CH ₃)COOCH ₃	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5654(19.8°C)
37	SCH(CH ₃)COOCH ₃	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5494(25.0°C)
38	SCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5565(28.0°C)
39	SCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5328(18.0°C)
40	NHCH(CH ₃)COOCH ₃	CH ₃	C1	C1	S	m. p. 144.2 °C
41	NHCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CH ₃	C1	C1	S	ペースト
42	NHCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5371(23.4°C)
43	NHCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5264(26.6°C)
44	COOCH ₂ COOCH ₃	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 74.4 °C
45	COOCH ₂ COOCH ₃	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5350(27.3°C)

表 1 (続き)

No	R	R ₂	X ₁	X ₂	(Y) n	物性
46	COOCH ₂ COSCH ₃	CHF ₂	C1	C1	0	
47	COOCH ₂ COSCH ₃	CHF ₂	F	C1	0	
48	COOCH ₂ COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 57.2 °C
49	COOCH ₂ COOC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5362(23.4°C)
50	COOCH ₂ COSC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5763(20.7°C)
51	COOCH ₂ COSC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5536(27.3°C)
52	COOCH ₂ COOC ₃ H ₇ -i	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5289(24.0°C)
53	COOCH ₂ COOC ₃ H ₇ -i	CHF ₂	F	C1	0	
54	COOCH ₂ COSC ₃ H ₇ -i	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5684(20.2°C)
55	COOCH ₂ COSC ₃ H ₇ -i	CHF ₂	F	C1	0	
56	COOCH ₂ COOCH ₂ CH=CH ₂	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 45.4 °C
57	COOCH ₂ COOCH ₂ CH=CH ₂	CHF ₂	F	C1	0	
58	COOCH ₂ COOCH ₂ C≡CH	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 79.3 °C
59	COOCH ₂ COOCH ₂ C≡CH	CHF ₂	F	C1	0	
60	COOCH(CH ₃)COOCH ₃	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5370(25.7°C)
61	COOCH(CH ₃)COOCH ₃	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5314(23.0°C)
62	COOCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5672(26.0°C)
63	COOCH(CH ₃)COOC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5212(14.1°C)
64	COOCH ₂ C≡CH	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 78.5 °C
65	COOCH ₃	CHF ₂	C1	C1	0	m. p. 63.9 °C
66	COOCH ₃	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5430(17.0°C)
67	COOC ₂ H ₅	CH ₃	C1	C1	S	nD 1.6029(20.1°C)
68	COOC ₂ H ₅	CHF ₂	C1	C1	0	nD 1.5446(26.8°C)
69	COOC ₂ H ₅	CHF ₂	F	C1	0	nD 1.5320(21.0°C)
70	OCH ₂ CH=CH ₂	CHF ₂	C1	C1	NH	m. p. 80.6 °C
71	OCH ₂ C≡CH	CHF ₂	C1	C1	NH	m. p. 118.9°C

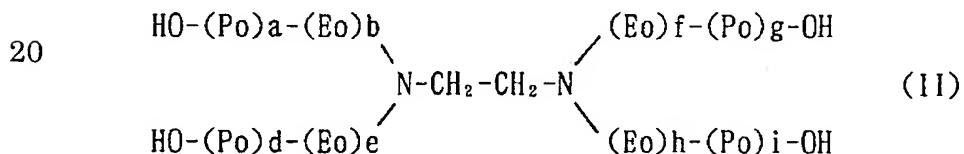
表1 (続き)

No	R	R ₂	X ₁	X ₂	(Y) n	物性
72	OCH ₂ COOCH ₃	i-C ₃ H ₇	Cl	Cl	-	ペースト
73	OCH ₂ CH=CH ₂	i-C ₃ H ₇	Cl	Cl	-	ペースト
74	OCH ₂ C≡CH	i-C ₃ H ₇	Cl	Cl	-	ペースト
75	SCH ₂ COOCH ₃	t-C ₄ H ₉	Cl	Cl	-	ペースト
76	OCH ₂ CH=CH ₂	CH ₂ Br	Cl	Cl	-	ペースト

本発明の一般式(I-1)で表される3-置換フェニルピラゾール誘導体で好ましい化合物としては、化合物N o 19の化合物を挙げることができる。

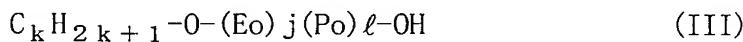
5 一方、本発明で使用する有機リン系除草性化合物は、N-（ホスホノメチル）
グリシン又はその塩としては、例えばN-（ホスホノメチル）グリシンイソプロ
ピルアミン塩（以下、化合物Aという。）若しくはアンモニウム塩又はN-（ホ
スホノメチル）グリシントリメチルスルホニウム塩（以下、化合物Bという。）
10 4-〔ヒドロキシ（メチル）ホスフィノ〕-DL-ホモアラニン又はその塩とし
ては、例えば4-〔ヒドロキシ（メチル）ホスフィノ〕-DL-ホモアラニンア
ンモニウム塩（以下、化合物Cという。）、4-〔ヒドロキシ（メチル）ホスフ
イノ〕-L-ホモアラニル-L-アラニル-L-アラニン又はその塩としては、
例えは4-〔ヒドロキシ（メチル）ホスフィノ〕-L-ホモアラニル-L-アラ
ニル-L-アラニンナトリウム塩（以下、化合物Dという。）等を例示するこ
15 ができ、好ましい化合物としてはN-（ホスホノメチル）グリシンイソプロピル
アミン塩を挙げることができる。

本発明で界面活性剤として使用するエチレンジアミンアルコキシレート類としては、一般式(II)



(式中、E o は $-O-CH_2-CH_2-$ を示し、P o は $-O-CH(CH_3)-CH_2-$ を示し、a、b、d、e、f、g、h 及び i は同一又は異なるても良い 1 ~ 20 の整数を示す。) で表される化合物が使用され、好ましいものとしては、例えば Teric 170 (ハンツマン社製)、Teric 173 (同社製) を例示することができ、これらのエチレンジアミンアルコキシケート類は 1 種又は 2 種以上選択して使用することができる。

又、アルコールアルコキシレート類としては、一般式(III)



(式中、E o は $-O-CH_2-CH_2-$ を示し、P o は $-O-CH(CH_3)-CH_2-$ を示し、j、k 及び ℓ は同一又は異なるても良い 1 ~ 20 の整数を示す。) で表される化合物が使用され、好ましいものとしては、例えばノイゲン ET-165 (第一工業製薬株製)、アデカトール SO-135 (旭電化株製)、ノイゲン ET-115 (第一工業製薬株製)、NK (ニューカルゲン) -D-1107S (竹本油脂株製)、ルーテンゾール T08 (ビーエーエスエフ社製)、TO-347 (日本乳化剤株製) 等を例示することができ、これらのアルコールアルコキシレート類は 1 種又は 2 種以上選択して使用することができる。

本発明の除草剤組成物における各成分の配合割合は、当該除草組成物 100 重量部中に光要求型除草活性化合物を 0.01 ~ 10.0 重量部で、好ましくは 0.1 ~ 2.0 重量部、有機リン系除草性化合物を 1.0 ~ 60.0 重量部で、好ましくは 5.0 ~ 40.0 重量部、エチレンジアミンアルコキシレート類を 0.1 ~ 25 重量部、好ましくは 10 ~ 25 重量部及びアルコールアルコキシレート類を 0.1 ~ 15.0 重量部、好ましくは 0.1 ~ 5.0 重量部の範囲でで存在させれば良い。

本発明の除草剤組成物を使用する場合、農薬製剤上の常法に従い目的に応じて適当な剤型に製剤して使用すれば良い。例えば固体担体、液体担体、その他必要に応じて補助剤等と混合して有効成分が微細な懸濁粒子状である懸濁剤、水和剤、顆粒水和剤等の剤型に調製して使用すれば良い。

更に、本発明は一般式(I) で表される光要求型除草活性化合物 1 重量部に対して本発明で使用する界面活性剤を 0.1 ~ 99.0 重量部、好ましくは 25.0

～75.0重量部含有する乳剤と、有機リン系除草性化合物を有効成分として含有する市販の製剤組成物とを散布薬液の調製時に混合して使用することもできる。

又、界面活性剤を含まない微粉碎された一般式(I)で表される光要求型除草活性化合物0.01～1.0重量部及び有機リン系除草性化合物1～5.0重量部を有

5 効成分として含有する懸濁剤又は顆粒水和剤を使用する場合、本発明で使用される界面活性剤を一般式(I)で表される光要求型除草活性化合物1重量部に対して1.0～9.0重量部の割合で散布薬液調製時に別途混合溶解して使用することもできる。

実施例

10 以下に本発明の代表的な実施例及び試験例を例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

尚、実施例中、部とあるのは重量部を示す。

(基剤)

化合物No 1 9	4 0 . 0 部
15 ネオコールY SK (第一工業製薬製)	1 . 0 部
ソルポール7425 (東邦化学工業製)	3 . 0 部
プロピレングリコール	3 . 0 部
シリコンKM-73 (信越化学製)	0 . 5 部
プロキセルG X L (ゼネカジャパン製)	0 . 1 部
20 ロドポール23 (ローディア日華社製)	0 . 0 2 部
水	残部
合計	1 0 0 部

上記組成の混合物を0.3mmのセラミックビーズ(トレセラム、東レ(株))を充填したダイノミル(バッコーフェン社)で微粉碎し、平均粒径0.

25 3μmの微粒子である化合物No 1 9を40%含有する懸濁状組成物とした。

本懸濁上組成物を基剤として実施例1～12を製造した。

実施例 1

化合物No 1 9 の基剤 (4 0 . 0 %)	0 . 4 1 部
---------------------------	-----------

	化合物A (62.0%水溶液)	50.80部
	Teric 170	10.00部
	ノイゲンET-165	2.00部
	プロピレングリコール	2.50部
5	ソプロフォールDSS/7-60 (分散剤: ローディア日華社製)	0.83部
	N-メチルピロリドン (溶剤)	0.15部
	シリコンKM-73 (消泡剤)	0.50部
	プロキセルGXL (防腐剤)	0.10部
10	アタグル50 (増粘剤: ネオライト興産製)	10.0部
	ロドポール23 (増粘剤)	0.10部
	水	残部
	合計	100.00部

上記組成の混合物をオートホモミキサー（特殊機化（株）製）等の混合機で充
15 分に混合し、化合物No. 19を0.15%及び化合物Aを30%含有する懸濁
状組成物とした。

実施例2～12

実施例1で使用したエチレンジアミナルコキシレート類、アルコールアルコ
キシレート類及び有機リン系除草性化合物を下記の表2に示すものに換えて同様
20 にして懸濁剤を得た。

表 2

実施例	有機リン系除草性化合物 エチレンジアミナルコキシレート類 アルコールアルコキシレート類	配合割合
		(重量部)
2	化合物A	30.00
	Teric 170	10.00
	アデカトールSO-135 (HLB=13)	2.00
3	化合物A	30.00
	Teric 170	10.00
	ノイゲンET-115 (HLB=11)	2.00
4	化合物A	30.00
	Teric 170	10.00
	NK(ニューカルゲン) D-1107S	2.00
5	化合物A	30.00
	Teric 170	10.00
	ルーテンゾールTO8 (HLB=13)	2.00
6	化合物A	30.00
	Teric 170	10.00
	TO-347	2.00
7	化合物A	30.0
	Teric 173	10.00
	ノイゲンET-165 (HLB=216)	2.00

表2 (続き)

実施例	有機リン系除草性化合物 エチレンジアミンアルコキシレート類 アルコールアルコキシレート類	配合割合 (重量部)
8	化合物A Teric 173 アデカトールSO-135	30.0 10.00 2.00
9	化合物A Teric 173 ノイゲンET-115	30.0 10.00 2.00
10	化合物B Teric 173 NK-D-1107S	30.0 10.00 2.00
11	化合物C Teric 173 ルーテンゾールTO8	30.0 10.00 2.00
12	化合物D Teric 173 TO-347	30.0 10.00 2.00

比較例 1

化合物Aを有効成分とする市販の製剤（グリホサートイソプロピルアミン塩液5 剤）を使用した。

比較例 2

実施例 1において、エチレンジアミンアルコキシレートを除き、アルコキシア
ルコレートを 2 部から 1 2 部に変えた組成物とした。

比較例 3

実施例 1において、アルコキシアルコレートを除き、エチレンジアミンアルコ
5 キシレートを 1 0 部から 1 2 部に変えた組成物とした。

試験例 1

直径 1 2 c m のプラスチック製ポットにイヌビエ (*Echinochloa crus-galli*)
及びオナモミ (*Xanthium strumarium*) を栽培し、7 葉期以上に達した時点で所定
薬量に調整した薬液を散布し、除草効果を薬液処理 3 日及び 2 1 日後に肉眼判定
10 (0 : 除草効果無～1 0 0 : 枯死) を行い評価した。

結果を表 3 に示す。

表3

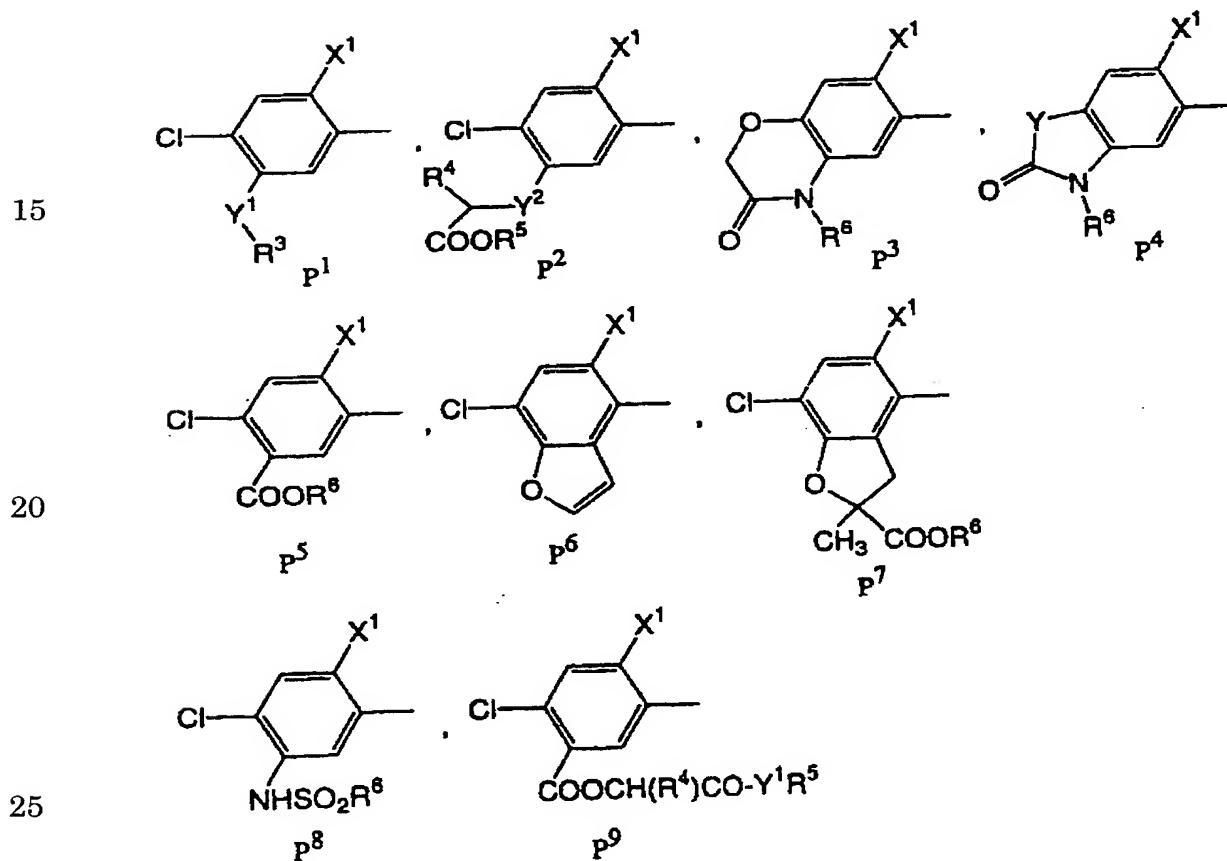
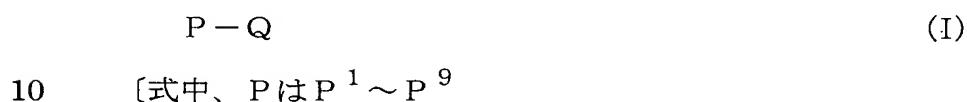
実施例	化合物(g/ha)		3日後		21日後	
	19	リン系	イヌビエ	オナモミ	イヌビエ	オナモミ
1	5	1000	68	85	100	100
2	5	1000	65	85	100	100
3	5	1000	60	85	100	100
4	5	1000	65	85	100	100
5	5	1000	68	83	100	100
6	5	1000	63	85	100	100
7	5	1000	65	85	100	100
8	5	1000	68	85	100	100
9	5	1000	68	83	100	100
10	5	1000	65	80	100	100
11	5	1000	68	83	100	100
12	5	1000	65	85	100	100
比較例1	0	1000	20	20	85	100
比較例2	5	1000	65	85	90	85
比較例3	5	1000	20	40	80	85

光要求型除草性化合物、特に3-置換フェニルピラゾール誘導体と有機リン系除草性化合物の混合組成物において、エチレンジアミノアルコキシレート類及び5アルコールアルコキシレート類を含有することにより、優れた除草効果の速効性及び効果の向上が得られた。

請求の範囲

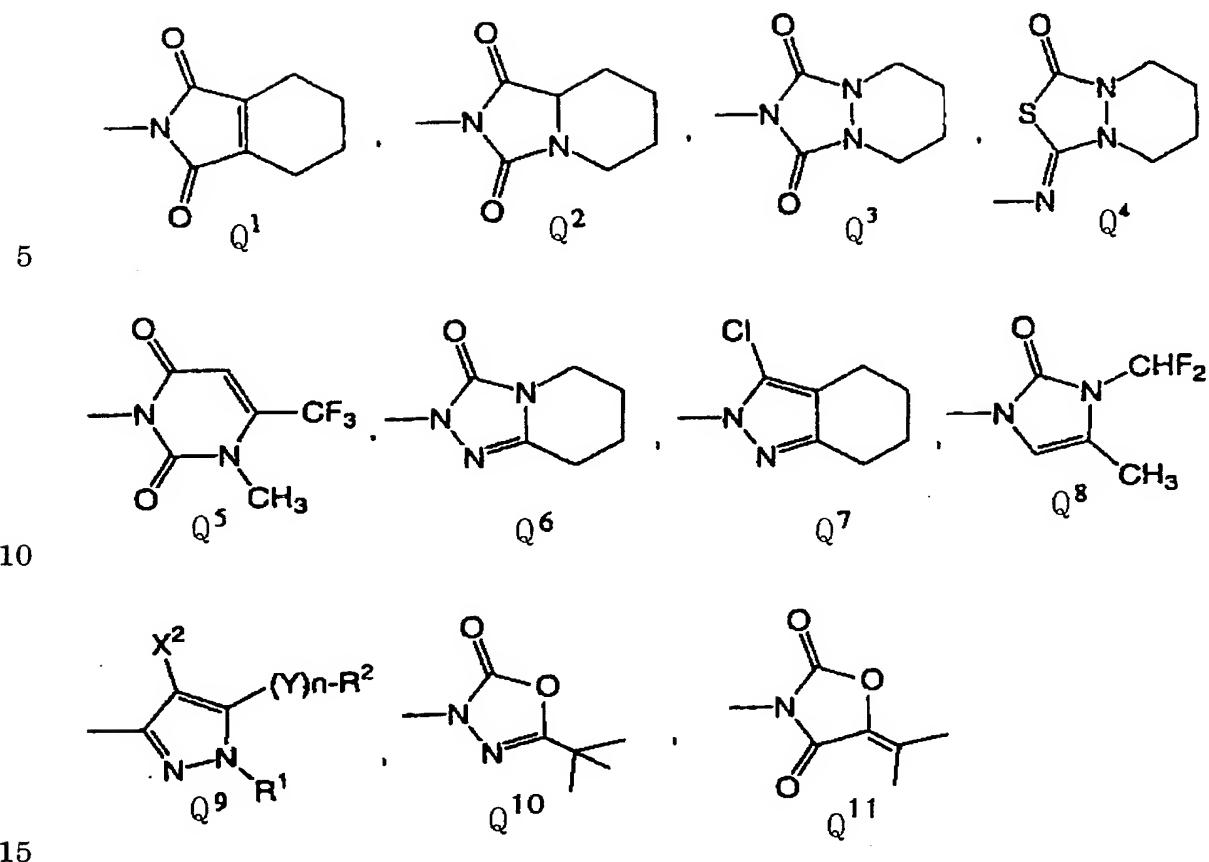
1. 光要求型除草性化合物から選択される 1 種又は 2 種以上の化合物及び有機リン系除草性化合物から選択される 1 種又は 2 種以上の化合物を有効成分として含有する除草剤組成物において、界面活性剤としてエチレンジアミナルコキシレート類及びアルコールアルコキシレート類を含有することを特徴とする除草剤組成物。

2. 光要求型除草性化合物が一般式(I)



(式中、 X¹、 Y¹、 Y²、 R³、 R⁴、 R⁵ 及び R⁶ は後記に示す。)
から選択される基を示し、 Q は Q¹ ~ Q¹¹

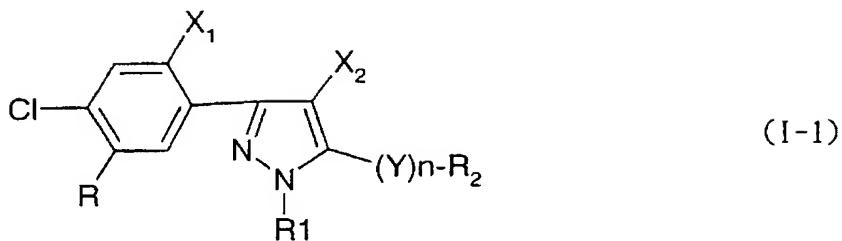
20



(式中、R¹は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R²は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基又はハロ(C₁-C₆)アルキル基を示し、R³は(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₃-C₆)シクロアルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、R⁴は水素原子又は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R⁵は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、R⁶は(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、X¹及びX²は同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、Yは-O-、-S-、-SO-又は-SO₂-を示し、Y¹は-O-又は-S-を示し、Y²は-O-、-S-又は-NH-を示し、nは0又は1の整数を示す。)]
で表される化合物である請求項1記載の除草剤組成物。

3. 光要求型除草性化合物が一般式(I-1)

5

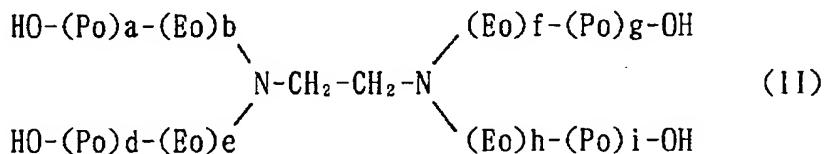


[式中、Rは-Y¹-R³（式中、R³は(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、Y₁は-O-又は-S-を示す。）、-Y²CH(R⁴)CO-OR⁵（式中、R⁴は水素原子又は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R⁵は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基、ハロ(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示し、Y²は-O-、-S-又は-NH-を示す。）、-COOCH(R⁴)CO-Y¹R⁵（式中、R⁴、R⁵及びY¹は前記に同じ。）又は-COOR⁶（式中、R⁶は(C₁-C₆)アルキル基、(C₂-C₆)アルケニル基又は(C₂-C₆)アルキニル基を示す。）を示し、R¹は(C₁-C₆)アルキル基を示し、R²は水素原子、(C₁-C₆)アルキル基又はハロ(C₁-C₆)アルキル基を示し、X¹及びX²は同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、Yは-O-、-S-、-SO-又は-SO₂-を示し、nは0~1の整数を示す。]

で表される3-置換フェニルピラゾール誘導体から選択される1種又は2種以上の化合物である請求項1記載の除草剤組成物。

4. 有機リン系除草性化合物がN-（ホスホノメチル）グリシン又はその塩、4-[ヒドロキシ（メチル）ホスフィノ]-DL-ホモアラニン又はその塩、4-[ヒドロキシ（メチル）ホスフィノ]-L-ホモアラニル-L-アラニル-L-アラニン又はその塩である請求項1記載の除草剤組成物。

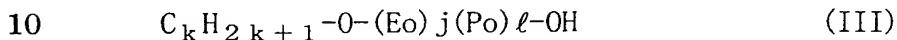
25 5. エチレンジアミンアルコキシレート類が一般式(II)



(式中、E_oは-O-CH₂CH₂-を示し、P_oは-O-CH(CH₃)CH₂-を示し、a、b、d、e、f、g、h及びiは同一又は異なっても良い1～20の整数を示す。)で表される化合物から選択される1種又は2種以上の化合物である請求項1記載の除草剤組成物。

5 6. エチレンジアミンアルコキシレート類がエチレンジアミンとポリオキシエチレンとの付加物、エチレンジアミンとポリオキシプロピレンとの付加物、エチレンジアミンとポリオキシエチレン及びポリオキシプロピレン共重合物との付加物である請求項5項記載の除草剤組成物。

7. アルコールアルコキシレート類が一般式(III)



(式中、E_oは-O-CH₂CH₂-を示し、P_oは-O-CH(CH₃)CH₂-、j、k及び ℓ は同一又は異なっても良い1～20の整数を示す。)で表される化合物から選択される1種又は2種以上の化合物である請求項1記載の除草剤組成物。

15 8. アルコールアルコキシレート類が1級アルコールエトキシレート、1級アルコールプロポキシレート、1級アルコールエトキシレートプロポキシレート、2級アルコールエトキシレート、2級アルコールプロポキシレート、2級アルコールエトキシレートプロポキシレート、3級アルコールエトキシレート、3級アルコールプロポキシレート又は3級アルコールエトキシレートプロポキシレート
20 から選択される1種又は2種以上の混合物である請求項7項記載の除草剤組成物。

9. 除草剤組成物100重量部中に光要求型除草性化合物から選択される1種又は2種以上の化合物が0.01～10重量部、有機リン系除草性化合物が1～60重量部、エチレンジアミンアルキレート類が0.1～25重量部及びアルコールアルコキシレート類が0.1～15重量部含有する請求項1～8いずれか1項記載の除草剤組成物。

10. 除草剤組成物が懸濁剤、顆粒水和剤又は水性製剤である請求項1～9いずれか1項記載の除草剤組成物。

11. 作物に有害な雑草を防除するために請求項1～10項いずれか1項記載の除草剤組成物の有効量を対象雑草又は土壤に処理することを特徴とする除草

剤組成物の使用方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05632

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ A01N43/56, A01N57/18, A01N25/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ A01N43/56, A01N57/18, A01N25/30

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI (DAIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 7-242510, A (NIHON NOHYAKU CO., LTD.), 19 September, 1995 (19.09.95) (Family: none)	1~11
A	EP, 595126, A1 (NIHON NOHYAKU CO., LTD.), 04 May, 1994 (04.05.94) & JP, 6-166604, A & BR, 9304364, A & CA, 2108710, A & CN, 1086084, A & TW, 256765, A & US, 5686386, A	1~11
A	EP, 862857, A1 (OSI SPECIALTIESINC.), 09 September, 1998 (09.09.98) & AU, 9856407, A & JP, 10-291903, A & CA, 2230769, A & ZA, 9803049, A & NZ, 329894, A & KR, 98079867, A & BR, 9800847, A	1~11
A	EP, 325054, A1 (DEUT ICI GMBH), 26 July, 1989 (26.07.89) & JP, 2-14240, A & US, 5279766, A	1~11
A	JP, 60-75324, A (Neos Co., Ltd.), 27 April, 1985 (27.04.85) (Family: none)	1~11

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 November, 2000 (16.11.00)

Date of mailing of the international search report
28 November, 2000 (28.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05632

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US, 4080191, A (SANDZ AG), 21 March, 1978 (21.03.78) & JP, 49-55852, A	1~11

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05632

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. C1' A01N43/56, A01N57/18, A01N25/30

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C1' A01N43/56, A01N57/18, A01N25/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 7-242510, A (日本農薬株式会社), 19. 9月. 1995 (19. 09. 95) (ファミリーなし)	1~11
A	E P, 595126, A1 (日本農薬株式会社), 4. 5月. 19 94 (04. 05. 94) & J P, 6-166604, A & B R, 9304364, A & C A, 2108710, A & C N, 1086084, A & T W, 256765, A & U S, 5686386, A	1~11

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16. 11. 00

国際調査報告の発送日

28.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

星 里予 紹英 印

4H 8217

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

C(続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	EP, 862857, A1 (OSI SPECIALTIES INC.) , 9. 9月. 1998 (09. 09. 98) & AU, 9856407, A & JP, 10-291903, A & CA, 2230769, A & ZA, 9803049, A & NZ, 329894, A & KR, 98079867, A & BR, 9800847, A	1~11
A	EP, 325054, A1 (DEUT ICI GMBH) , 26. 7月. 1989 (26. 07. 89) & JP, 2-14240, A & US, 5279766, A	1~11
A	JP, 60-75324, A (株式会社ネオス) , 27. 4月. 1985 (27. 04. 85) (ファミリーなし)	1~11
A	US, 4080191, A (SANDZ AG) , 21. 3月. 1978 (21. 03. 78) & JP, 49-55852, A	1~11